

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2001-135509

(43)Date of publication of application : 18.05.2001

(51)Int.CI.

H01F 1/053  
 B22F 1/00  
 C22C 19/07  
 C22C 38/00  
 C22C 38/38  
 F16C 13/00  
 G03G 15/09  
 H01F 1/08

(21)Application number : 2000-248647

(71)Applicant : HITACHI METALS LTD

(22)Date of filing : 18.08.2000

(72)Inventor : TOBISE MASAHIRO  
TANIGAWA SHIGEO

(30)Priority

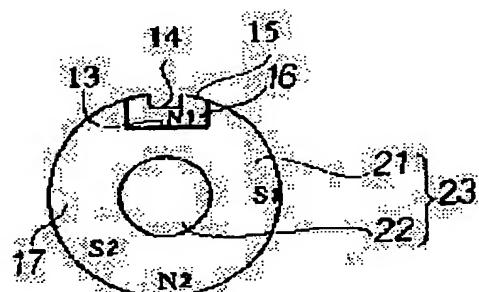
Priority number : 11234156 Priority date : 20.08.1999 Priority country : JP

## (54) ISOTROPIC RARE EARTH MAGNET MATERIAL, ISOTROPIC BOND MAGNET, ROTATING MACHINE AND MAGNET ROLL

## (57)Abstract:

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To provide nitriding type isotropic rare earth magnet material of high performance which is composed of hard magnetic phase of ultrafine crystal grains, or hard magnet phase of ultrafine crystal grains and soft magnetic phase, and has improved magnetizing property.

**SOLUTION:** This nitriding type isotropic rare earth magnet material has main component composition shown by  $R\alpha T100-(\alpha+\beta+\gamma)M\beta Ny$  in atomic percentage (R is at least two kinds out of rare earth elements containing Y and contains Sm and La, occupation ratio of Sm in R is at least 50 at.%, La content is 0.05-2 at.%, T is Fe or Fe and Co, M is at least one kind out of Zr, Nb, Hf, B, Ti, Al, Sc, Cr and Mn,  $4\leq\alpha\leq15$ ,  $0\leq\beta\leq10$  and  $10\leq\gamma\leq20$ ), and is practically composed of hard magnetic phase whose main part is TbCu7 type crystal phase. The mean area ratio of soft magnetic phase having bcc structure is less than 10% (containing 0%).



## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of  
rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of  
rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11)特許出願公開番号  
特開2001-135509  
(P2001-135509A)

(43)公開日 平成13年5月18日(2001.5.18)

(51) Int.Cl.<sup>7</sup> 認別記号 F I テーマコード<sup>8</sup>(参考)  
 H 0 1 F 1/053 B 2 2 F 1/00 Y  
 B 2 2 F 1/00 C 2 2 C 19/07 G  
 C 2 2 C 19/07 38/00 E  
 38/00 3 0 3 38/38 3 0 3 D

(21) 出願番号 特願2000-248647(P2000-248647)

(22) 出願日 平成12年8月18日(2000.8.18)

(31) 優先権主張番号 特願平11-234156

(32) 優先日 平成11年8月20日(1999.8.20)

(33) 優先権主張国 日本(JP)

(71) 出願人 000005083  
日立金属株式会社  
東京都港区芝浦一丁目 2 番 1 号

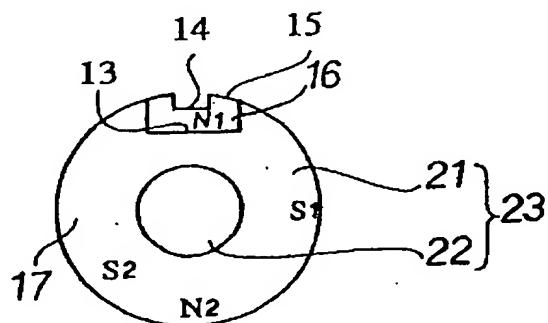
(72) 発明者 飛世 正博  
埼玉県熊谷市三ヶ尻5200番地日立金属株式  
会社磁性材料研究所内

(72) 発明者 谷川 茂穂  
埼玉県熊谷市三ヶ尻5200番地日立金属株式  
会社熊谷磁材工場内

(54) [審査の名称] 等方性希土類磁石材料、等方性ボンド磁石、回転機およびマグネットロール

(57) 【要約】

【課題】 超微結晶粒の硬質磁性相、又は超微結晶粒の硬質磁性相と軟質磁性相とからなり、着磁性を向上した高性能の窒化型等方性希土類磁石材料を提供する。



## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 原子%で $R_aT_{100-(\alpha+\beta+\gamma)}M_\beta$ 

$N_x$  ( $R$ は $Y$ を含む希土類元素の少なくとも2種であつて $S$  $m$ および $L$  $a$ を含み、 $R$ に占める $S$  $m$ 比率が50原子%以上であり、 $L$  $a$ 含有量が0.05~2原子%であり、 $T$ は $F$  $e$ または $F$  $e$ と $C$  $o$ であり、 $M$ は $Z$  $r$ ,  $N$  $b$ ,  $H$  $f$ ,  $B$ ,  $T$  $i$ ,  $A$  $l$ ,  $S$  $c$ ,  $C$  $r$ ,  $Mn$ の少なくとも1種であり、 $4 \leq \alpha \leq 15$ ,  $0 \leq \beta \leq 10$ ,  $10 \leq \gamma \leq 20$ ) で表される主要成分組成を有し、 $T$  $b$  $C$  $u$ ,型結晶相を主体とする硬質磁性相から実質的になるとともに、 $b$  $c$  $c$ 構造の軟質磁性相の平均面積率が10%未満 (0%を含む) であることを特徴とする等方性希土類磁石材

料であつて、  
 $b$  $c$  $c$ 構造の軟質磁性相の平均面積率が10%未満 (0%を含む) であることを特徴とする等方性希土類磁石材。

【請求項2】 前記硬質磁性相の平均結晶粒径が2~50nmであり、前記軟質磁性相の平均結晶粒径が2~60nmである請求項1に記載の等方性希土類磁石材料。

【請求項3】 溶湯急冷法により作製された $R-T$ 系母合金 ( $R$ は $Y$ を含む希土類元素の少なくとも2種であつて $S$  $m$ および $L$  $a$ を含み、 $T$ は $F$  $e$ または $F$  $e$ と $C$  $o$ であり、必要に応じて $Z$  $r$ ,  $N$  $b$ ,  $H$  $f$ ,  $B$ ,  $T$  $i$ ,  $A$  $l$ ,  $S$  $c$ ,  $C$  $r$ ,  $Mn$ の少なくとも1種からなる $M$ 元素を含む) に窒化処理を施してなる請求項1または2に記載の等方性希土類磁石材料。【請求項4】 原子%で $R_aT_{100-(\alpha+\beta+\gamma)}M_\beta$ 

$N_x$  ( $R$ は $Y$ を含む希土類元素の少なくとも2種であつて $S$  $m$ および $L$  $a$ を含み、 $R$ に占める $S$  $m$ 比率が50原子%以上であり、 $L$  $a$ 含有量が0.05~2原子%であり、 $T$ は $F$  $e$ または $F$  $e$ と $C$  $o$ であり、 $M$ は $Z$  $r$ ,  $N$  $b$ ,  $H$  $f$ ,  $B$ ,  $T$  $i$ ,  $A$  $l$ ,  $S$  $c$ ,  $C$  $r$ ,  $Mn$ の少なくとも1種であり、 $4 \leq \alpha \leq 15$ ,  $0 \leq \beta \leq 10$ ,  $10 \leq \gamma \leq 20$ ) で表される主要成分組成を有し、 $T$  $b$  $C$  $u$ ,型結晶相を主体とする硬質磁性相から実質的になるとともに、 $b$  $c$  $c$ 構造の軟質磁性相の平均面積率が10%未満 (0%を含む) である等方性希土類磁石材料の粉末をバインダーで結着してなることを特徴とする等方性ボンド磁石。

【請求項5】 原子%で $R_aT_{100-(\alpha+\beta+\gamma)}M_\beta$ 

$N_x$  ( $R$ は $Y$ を含む希土類元素の少なくとも2種であつて $S$  $m$ および $L$  $a$ を含み、 $R$ に占める $S$  $m$ 比率が50原子%以上であり、 $L$  $a$ 含有量が0.05~2原子%であり、 $T$ は $F$  $e$ または $F$  $e$ と $C$  $o$ であり、 $M$ は $Z$  $r$ ,  $N$  $b$ ,  $H$  $f$ ,  $B$ ,  $T$  $i$ ,  $A$  $l$ ,  $S$  $c$ ,  $C$  $r$ ,  $Mn$ の少なくとも1種であり、 $4 \leq \alpha \leq 15$ ,  $0 \leq \beta \leq 10$ ,  $10 \leq \gamma \leq 20$ ) で表される主要成分組成を有し、 $T$  $b$  $C$  $u$ ,型結晶相を主体とする硬質磁性相から実質的になるとともに、 $b$  $c$  $c$ 構造の軟質磁性相の平均面積率が10%未満 (0%を含む) である等方性希土類磁石材料の粉末をバインダーで結着してなる等方性ボンド磁石を用いて構成したことを特徴とする回転機。

【請求項6】 原子%で $R_aT_{100-(\alpha+\beta+\gamma)}M_\beta$ 

10

【請求項7】 原子%で $R_aT_{100-(\alpha+\beta+\gamma)}M_\beta$ 

$N_x$  ( $R$ は $Y$ を含む希土類元素の少なくとも2種であつて $S$  $m$ および $L$  $a$ を含み、 $R$ に占める $S$  $m$ 比率が50原子%以上であり、 $L$  $a$ 含有量が0.05~2原子%であり、 $T$ は $F$  $e$ または $F$  $e$ と $C$  $o$ であり、 $M$ は $Z$  $r$ ,  $N$  $b$ ,  $H$  $f$ ,  $B$ ,  $T$  $i$ ,  $A$  $l$ ,  $S$  $c$ ,  $C$  $r$ ,  $Mn$ の少なくとも1種であり、 $4 \leq \alpha \leq 15$ ,  $0 \leq \beta \leq 10$ ,  $10 \leq \gamma \leq 20$ ) で表される主要成分組成を有し、 $T$  $b$  $C$  $u$ ,型結晶相を主体とする硬質磁性相と、 $b$  $c$  $c$ 構造の軟質磁性相とから実質的になる等方性希土類磁石材料であつて、

前記硬質磁性相の平均結晶粒径が2~500nmであり、前記軟質磁性相の平均結晶粒径が2~60nmでありかつ平均面積率が10~60%であることを特徴とする等方性希土類磁石材料。

【請求項8】 溶湯急冷法により作製された $R-T$ 系母合金 ( $R$ は $Y$ を含む希土類元素の少なくとも2種であつて $S$  $m$ および $L$  $a$ を含み、 $T$ は $F$  $e$ または $F$  $e$ と $C$  $o$ であり、必要に応じて $Z$  $r$ ,  $N$  $b$ ,  $H$  $f$ ,  $B$ ,  $T$  $i$ ,  $A$  $l$ ,  $S$  $c$ ,  $C$  $r$ ,  $Mn$ の少なくとも1種からなる $M$ 元素を含む) に窒化処理を施してなる請求項7に記載の等方性希土類磁石材料。
【請求項9】 原子%で $R_aT_{100-(\alpha+\beta+\gamma)}M_\beta$ 

$N_x$  ( $R$ は $Y$ を含む希土類元素の少なくとも2種であつて $S$  $m$ および $L$  $a$ を含み、 $R$ に占める $S$  $m$ 比率が50原子%以上であり、 $L$  $a$ 含有量が0.05~2原子%であり、 $T$ は $F$  $e$ または $F$  $e$ と $C$  $o$ であり、 $M$ は $Z$  $r$ ,  $N$  $b$ ,  $H$  $f$ ,  $B$ ,  $T$  $i$ ,  $A$  $l$ ,  $S$  $c$ ,  $C$  $r$ ,  $Mn$ の少なくとも1種であり、 $4 \leq \alpha \leq 15$ ,  $0 \leq \beta \leq 10$ ,  $10 \leq \gamma \leq 20$ ) で表される主要成分組成を有し、 $T$  $b$  $C$  $u$ ,型結晶相を主体とする硬質磁性相と、 $b$  $c$  $c$ 構造の軟質磁性相とから実質的になるとともに、前記硬質磁性相の平均結晶粒径が2~500nmであり、前記軟質磁性相の平均結晶粒径が2~60nmでありかつ平均面積率が10~60%である等方性希土類磁石材料の粉末をバインダーで結着してなることを特徴とする等方性ボンド磁石。

【請求項10】 原子%で $R_aT_{100-(\alpha+\beta+\gamma)}M_\beta$ 

$N_x$  ( $R$ は $Y$ を含む希土類元素の少なくとも2種であつて $S$  $m$ および $L$  $a$ を含み、 $R$ に占める $S$  $m$ 比率が50原

50

子%以上であり、La含有量が0.05~2原子%であり、TはFeまたはFeとCoであり、MはZr, Nb, Hf, B, Ti, Al, Sc, Cr, Mnの少なくとも1種であり、 $4 \leq \alpha \leq 15$ ,  $0 \leq \beta \leq 10$ ,  $10 \leq \gamma \leq 20$ で表される主要成分組成を有し、TbCu<sub>7</sub>型結晶相を主体とする硬質磁性相と、bcc構造の軟質磁性相とから実質的になるとともに、前記硬質磁性相の平均結晶粒径が2~500nmであり、前記軟質磁性相の平均結晶粒径が2~60nmでありかつ平均面積率が10~60%である等方性希土類磁石材料の粉末をバインダーで結着してなる等方性ボンド磁石を用いて構成したことを特徴とする回転機。

【請求項11】 原子%でR<sub>α</sub>T<sub>100-(α+β+γ)</sub>M<sub>β</sub>N<sub>γ</sub> (RはYを含む希土類元素の少なくとも2種であってSmおよびLaを含み、Rに占めるSm比率が50原子%以上であり、La含有量が0.05~2原子%であり、TはFeまたはFeとCoであり、MはZr, Nb, Hf, B, Ti, Al, Sc, Cr, Mnの少なくとも1種であり、 $4 \leq \alpha \leq 15$ ,  $0 \leq \beta \leq 10$ ,  $10 \leq \gamma \leq 20$ で表される主要成分組成を有し、TbCu<sub>7</sub>型結晶相を主体とする硬質磁性相と、bcc構造の軟質磁性相とから実質的になるとともに、前記硬質磁性相の平均結晶粒径が2~500nmであり、前記軟質磁性相の平均結晶粒径が2~60nmでありかつ平均面積率が10~60%である等方性希土類磁石材料の粉末をバインダーで結着してなる等方性ボンド磁石を用いて構成したことを特徴とするマグネットロール。

#### 【発明の詳細な説明】

##### 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、超微結晶粒の硬質磁性相、あるいは超微結晶粒の硬質磁性相と軟質磁性相とから実質的になり、従来に比べて着磁性を向上した高性能の窒化型等方性希土類磁石材料およびそれを用いた高性能の等方性ボンド磁石に関する。また本発明は、前記高性能の等方性ボンド磁石を用いて構成した回転機に関する。また本発明は、前記高性能の等方性ボンド磁石を用いて構成したマグネットロールに関する。

##### 【0002】

【従来の技術】従来よりNd-Fe-B系磁粉を配合した等方性ボンド磁石が多用されているが、キュリー温度が300°C前後と低く、固有保磁力H<sub>c</sub>の温度係数が大きいため高温での使用が制限されてきた。また近年、Sm<sub>2</sub>Fe<sub>17</sub>化合物が窒素を吸収することによりNd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B化合物よりも高いキュリー温度: 470°Cおよび異方性磁界: 20.7MA/m (260kOe) を有することから、ボンド磁石用磁粉として工業化が開始されている。しかし、Sm<sub>2</sub>Fe<sub>17</sub>N<sub>x</sub>化合物は单磁区臨界粒子径(数μm)まで微粒化しないと有用な保磁力を得られない。しかし、Sm<sub>2</sub>Fe<sub>17</sub>N<sub>x</sub>化合物の粉末をバインダーで結着してなる等方性ボンド磁石を実用性に富んだ1.59MA/m

/m (20kOe)程度の着磁磁界で着磁して得られる最大エネルギー積(BH)<sub>max</sub>は63.7kJ/m<sup>3</sup> (8MG0e)程度であり、さらなる高性能化が困難な状況にある。

【0003】上記問題を解決する提案として、特開平8-316018号公報に、R (Rは希土類元素の1種以上であり、R中のSmの比率は50原子%以上である)、T (TはFeまたはFeとCoである)、NおよびM (MはZrであるか、Zrの一部をTi, V, Cr, Nb, Hf, Ta, Mo, W, Al, CおよびPから選択される少なくとも1種の元素で置換したものである)を含有し、Rを4~8原子%、Nを10~20原子%、Mを2~10原子%含有し、残部が実質的にTであり、R, TおよびNを主体とし、TbCu<sub>7</sub>型、Th<sub>2</sub>Zn<sub>11</sub>型およびTh<sub>2</sub>Ni<sub>11</sub>型から選択される少なくとも1種の結晶相を含む硬質磁性相と、bcc構造のT相からなる軟質磁性相とを有し、軟質磁性相の平均結晶粒径が5~60nmであり、軟質磁性相の割合が10~60体積%である等方性磁石粉末および等方性ボンド磁石が開示されている。また福野、山本、日高: “SmFe<sub>17</sub>N<sub>x</sub>+αFe系微細複合磁石の開発”, 「粉体および粉末冶金」第46巻第6号 (1999) 581~588には、前記複合磁石の(BH)<sub>max</sub>が、1.59MA/m (20kOe)で着磁した場合で32~70kJ/m<sup>3</sup> (4.0~8.8MG0e)である旨の報告がある。室温の1.59MA/m (20kOe)程度の実用性に富んだ低い着磁磁界で着磁した場合に従来よりも高い(BH)<sub>max</sub>を有する窒化型等方性ボンド磁石を得られれば(いわゆる着磁性を向上できれば)、各種磁石応用製品の高性能化あるいは小型、軽量化に寄与することができる。しかしながら、特開平8-316018号公報あるいは前記論文に記載の等方性磁石粉末および等方性ボンド磁石はこの着磁性に關し検討の余地を残していた。

##### 【0004】

【発明が解決しようとする課題】したがって、本発明の課題は、超微結晶粒の硬質磁性相、あるいは超微結晶粒の硬質磁性相と軟質磁性相とから実質的になり、従来に比べて着磁性を向上した高性能の窒化型等方性希土類磁石材料およびそれを用いてなる高性能の等方性ボンド磁石を提供することである。また本発明の課題は、前記等方性ボンド磁石を用いて構成した高性能の回転機を提供することである。また本発明の課題は、前記等方性ボンド磁石を用いて構成した高性能のマグネットロールを提供することである。

##### 【0005】

【課題を解決するための手段】上記課題を解決した本発明の等方性希土類磁石材料は、原子%でR<sub>α</sub>T<sub>100-(α+β+γ)</sub>M<sub>β</sub>N<sub>γ</sub> (RはYを含む希土類元素の少なくとも2種であってSmおよびLaを含み、Rに占めるSm比率が50原子%以上であり、La含有量が0.05~2原子%であり、TはFeまたはFeとCoであり、MはZr, Nb, Hf, B, Ti, Al, Sc, C

$r$ ,  $Mn$ の少なくとも1種であり、 $4 \leq \alpha \leq 15$ ,  $0 \leq \beta \leq 10$ ,  $10 \leq \gamma \leq 20$ で表される主要成分組成を有し、 $TbCu_7$ 型結晶相を主体とする硬質磁性相から実質的になる等方性希土類磁石材料であって、 $bcc$ 構造の軟質磁性相の平均面積率が10%未満(0%を含む)であることを特徴とする。前記硬質磁性相の平均結晶粒径が2~500nmであり、前記軟質磁性相の平均結晶粒径が2~60nmである場合に、従来に比べて着磁性を向上した等方性希土類磁石材料を得られ、好ましい。

【0006】また本発明の等方性希土類磁石材料は、原子%で $R_xT_{100-(\alpha+\beta+\gamma)}M_xN$ 、(RはYを含む希土類元素の少なくとも2種であってSmおよびLaを含み、Rに占めるSm比率が50原子%以上であり、La含有量が0.05~2原子%であり、TはFeまたはFeとCoであり、MはZr, Nb, Hf, B, Ti, Al, Sc, Cr, Mnの少なくとも1種であり、 $4 \leq \alpha \leq 15$ ,  $0 \leq \beta \leq 10$ ,  $10 \leq \gamma \leq 20$ で表される主要成分組成を有し、 $TbCu_7$ 型結晶相を主体とする硬質磁性相と、 $bcc$ 構造の軟質磁性相とから実質的になる等方性希土類磁石材料であって、前記硬質磁性相の平均結晶粒径が2~500nmであり、前記軟質磁性相の平均結晶粒径が2~60nmでありかつ平均面積率が10~60%であることを特徴とする。

【0007】本発明の等方性希土類磁石材料は、溶湯急冷法により作製されたR-T系母合金(RはYを含む希土類元素の少なくとも2種であってSmおよびLaを含み、TはFeまたはFeとCoであり、必要に応じてZr, Nb, Hf, B, Ti, Al, Sc, Cr, Mnの少なくとも1種からなるM元素を含む)に窒化処理を施すことにより製造できる。R-T(-M)系母合金は超微結晶粒および/または非晶質状態(より好適なのは非晶質状態)を呈する。次に、上記nmサイズの超微結晶粒組織にするための熱処理を施す。次に、所定粒径の粉末に粉碎し、次いで窒化する。こうして得られた等方性希土類磁石材料の粉末をバインダーで結着してなる等方性ボンド磁石は従来の窒化型等方性ボンド磁石に比べて良好な着磁性を示し、有用である。

【0008】前記等方性ボンド磁石を組み込んで構成した回転機あるいはマグネットロールは従来の窒化型等方性ボンド磁石を用いて構成したものに比べて高性能のものになり、有用である。

【0009】

【発明の実施の形態】以下に本発明の等方性希土類磁石材料の組成限定理由を説明する。R含有量は4~15原子%が好ましい。概略の目安として、本発明の等方性希土類磁石材料が実質的に $TbCu_7$ 型結晶相を主体とする硬質磁性相からなる場合、R含有量を7原子%超15原子%以下にすることによく、7.5~12原子%にすることにより好ましく、8~11原子%にすることが特に好ましい。また本発明の等方性希土類磁石材料が $TbCu_7$ 型

結晶相を主体とする硬質磁性相と $bcc$ 構造の軟質磁性相とから実質的になる場合、R含有量を4原子%以上8原子%未満にすることが好ましく、4.5~7.5原子%にすることがより好ましく、5~7原子%にすることが特に好ましい。R含有量が4原子%未満ではiHcが397.9kA/m(5kOe)未満になり、15原子%超ではBr, (BH)maxが顕著に低下し、いずれの場合も実用に供することが困難になる。着磁性を向上するために、Rに占めるSm比率が50原子%以上であり、かつ前記等方性希土類磁石材料の基本組成全体を100原子%としてLa含有量を0.05~2原子%に調整することが必須である。La含有量が0.05原子%未満では着磁性を向上することができず、2原子%超では最終的に得られる等方性ボンド磁石のiHcが397.9kA/m(5kOe)未満になり、(BH)max, 角形比(Hk/iHc)が劣化する。Rが前記所定量のSmおよびLaを含む場合に異方性磁界(Ha)および飽和磁束密度(Bs)はやや低下するが、室温の1.59MA/m(20kOe)で着磁した場合の等方性ボンド磁石の(BH)maxおよび角形比(Hk/iHc)を高められ、着磁性を向上することができる。Hkは $4\pi I - H$ 減磁曲線上において0.9Brの位置におけるHの読値であり、角形比(Hk/iHc)は $4\pi I - H$ 減磁曲線の矩形性の程度を示す。Brは残留磁束密度、Hは印加磁界の強さ、 $4\pi I$ は磁化の強さ、iHcは固有保磁力である。RにはSmおよびLa以外にY, Ce, Pr, Nd, Eu, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm, Yb, Lu等の他の希土類元素の少なくとも1種を含むことが許容される。本発明の等方性希土類磁石材料用原料としてSmおよびLaを含むミッショメタルやジジム等の安価な混合希土類合金を用いてもよい。Rとして、SmおよびLaとY, Ce, Pr, Nd, Gd, Dy, Erの少なくとも1種の組み合わせが好ましく、SmおよびLaとY, Ce, Pr, Ndの少なくとも1種の組み合わせがより好ましく、不可避的R成分を除いてRがSmおよびLaからなる場合が最も好ましい。実用上、Rに占めるSm比率は70原子%以上がより好ましく、95原子%以上がさらに好ましい。

【0010】M元素はZr, Nb, Hf, B, Ti, Al, Sc, Cr, Mnの少なくとも1種であり、所定量のM元素を含有することにより、溶湯急冷法により得られるR-T-M系母合金の非晶質化が促進され、最終的に得られる等方性希土類磁石材料の超微結晶粒化が促進される。M元素の含有量は0.2~10原子%が好ましい。M元素の含有量が0.2原子%未満では超急冷し、得られるR-T-M系母合金の非晶質化を促進する効果を実質的に得られない。さらには最終的に得られる等方性希土類磁石材料の硬質磁性相あるいは軟質磁性相の超微結晶粒化を促進する効果を得られず、また超微結晶粒の粒径分布がシャープになり(BH)max, 角形比(Hk/iHc)が向上するといったM元素による添加効果を得られない。一方、M元素の含有量が10原子%超では(BH)max, Brの低

下が顕著になる。

【0011】窒素含有量は10~20原子%が好ましく、11~15原子%がより好ましい。窒素含有量が10原子%未満および20原子%超では(BH)<sub>max</sub>、iHcが大きく低下する。

【0012】Feの一部をCoで置換することによりキュリー温度およびiHcの温度係数を改善することができる。前記基本組成全体を100原子%として、Co含有量は0.5~35原子%が好ましく、1~20原子%がより好ましい。Co含有量が0.5原子%未満では添加効果を得られず、Co含有量が35原子%超ではBr、iHcが大きく低下する。

【0013】硬質磁性相はR、TおよびNを主体とし、六方晶系のTbCu<sub>2</sub>型結晶相から実質的になることが好ましいが、TbCu<sub>2</sub>型結晶相を主体とし菱面体晶系のTh<sub>2</sub>Zn<sub>1</sub>型および/またはTh<sub>2</sub>Ni<sub>1</sub>型結晶相との混晶からなる場合も本発明に包含される。すなわち、硬質磁性相においてTbCu<sub>2</sub>型結晶相の平均面積率が最大の場合は全て本発明に包含される。なお、M元素は主に硬質磁性相中に存在すると判断されるが、軟質磁性相(T相)中に存在する場合も観察されている。硬質磁性相の平均結晶粒径は、好ましくは2~500nm、より好ましくは5~100nm、特に好ましくは5~50nmである。硬質磁性相の平均結晶粒径が2nm未満および500nm超では実用に耐える(BH)<sub>max</sub>、iHcを付与することが困難である。

【0014】本発明の等方性希土類磁石材料における軟質磁性相はbcc(体心立方晶)構造のT相であり、α-Feであるか、あるいはα-Feの一部がCo、M元素あるいはR元素等で置換されたものと判断される。軟質磁性相の平均結晶粒径が好ましくは2~60nm、さらに好ましくは5~40nmのときに従来に比べて着磁性を向上でき、高い(BH)<sub>max</sub>、高い角形比(Hk/iHc)を得られ、397.9kA/m(5kOe)以上のiHcを得ることができる。結晶磁気異方性が高い硬質磁性相と飽和磁化が高い軟質磁性相との混在組織からなる本発明の等方性希土類磁石材料はnmサイズに超微粒化した結晶粒からなるので硬質磁性相と軟質磁性相との界面が多数形成されて顕著な交換異方性を生じているものと判断される。軟質磁性相の平均結晶粒径が2nm未満ではBr、(BH)<sub>max</sub>が顕著に劣化し、60nm超ではiHcが顕著に劣化する。

【0015】透過型電子顕微鏡により観察すると硬質磁性相および軟質磁性相は通常不定形状を呈している。平均結晶粒径は本発明の等方性希土類磁石材料の断面組織を透過型電子顕微鏡により観察し、撮影した断面写真を画像解析して算出する。まず、断面写真の測定対象視野中に存在する軟質磁性相(硬質磁性相)の結晶粒の数

(n) および各結晶粒の断面積の合計(S)を、画像解析により算出する。次に、軟質磁性相(硬質磁性相)の結晶粒1個あたりの平均断面積(S/n)を算出し、面積が(S/n)である円の直径(D)を平均結晶粒径と定義する。

またn=50とする。すなわち、平均結晶粒径(D)は、式： $\pi(D/2)^2=S/n$ から算出する。本発明の等方性希土類磁石材料に占める軟質磁性相の割合は10~60体積%が好ましく、10~40体積%がより好ましく、10~35体積%が特に好ましい。軟質磁性相の割合が10体積%未満では軟質磁性相の寄与によるBr、(BH)<sub>max</sub>の向上効果が実質的に得られなくなり、60体積%超では397.9kA/m(5kOe)以上のiHcを得ることが困難になる。また軟質磁性相(硬質磁性相)の平均面積率は上記断面写真を用い、面積分析法により算出する。

【0016】本発明に適用する溶湯急冷法は特に限定されず、単ロール法、双ロール法あるいはアトマイズ法等の公知の溶湯急冷法から適宜選択することができる。単ロール法または双ロール法による場合は通常Cu合金製の冷却ロールを用い、冷却ロールの周速を15m/秒以上、好ましくは30m/秒以上、さらに好ましくは45m/秒以上、特に好ましくは50~120m/秒にすることがよい。冷却ロールの周速を極力早めることにより、R-T(-M)系母合金が超微結晶粒状態および/または非晶質状態になる。次に、熱処理により上記nmサイズに超微結晶粒化し、次いで窒化することにより従来に比べて着磁性を向上した等方性希土類磁石材料を得られる。R-T(-M)系母合金は通常薄帯状を呈する。特に限定されないが、上記nmサイズの超微結晶粒を得るために、前記母合金薄帯の厚みを通常8~200μmとすることが好ましく、10~60μmとすることがより好ましい。

【0017】R-T(-M)系母合金を上記nmサイズに超微結晶粒化するための熱処理は、不活性ガス雰囲気中または真空中で行うことが好ましい。あるいは水素ガスを含む非酸化性雰囲気中で行ってもよい。熱処理の加熱条件は好ましくは400~800°C×0.1~300時間であり、より好ましくは600~800°C×0.2~10時間である。この加熱条件を外れると上記nmサイズのものを得ることが困難になる。

【0018】熱処理後、必要に応じて粉碎を行い、次いで篩分(分級)し、窒化に供するR-T(-M)母合金粉末の粒径分布を適宜調整する。この操作により均一な窒化組織を得られ、成形性が向上し、等方性ボンド磁石の密度を高めることができる。なお、熱処理前に必要に応じて粉碎を行ってもよい。次いで窒化を行う。窒化は0.2~10atmの窒素ガス、水素が1~95モル%で残部が窒素からなる(水素+窒素)の混合ガス、NH<sub>3</sub>が1~50モル%で残部が水素からなる(NH<sub>3</sub>+水素)の混合ガスのいずれかの雰囲気中で300~650°C×0.1~30時間加熱するガス窒化が実用性に富んでいる。ガス窒化の加熱条件は400~550°C×0.5~20時間がより好ましい。ガス窒化の加熱条件が300°C×0.1時間未満では窒化が実質的に進行せず、650°C×30時間超では逆にRNとFe-M相を生成しHcの低下を招く。窒化ガスの圧力は0.2~10atmが好ましく、0.5~5atmがより好ましい。0.2atm未

満では窒化反応が非常に遅くなり、10atm超では高圧ガス設備によるコスト増を招く。窒化後に、真空中あるいは不活性ガス中（窒素ガスを除く）で300～600°C×0.5～50時間の熱処理を行うと、iHcをさらに高めることができる。前記等方性希土類磁石材料粉末の全体組成を100原子%として、合計で0.01～15原子%のH, C, O, P, S, Siの少なくとも1種を含有することが許容される。

【0019】本発明の等方性希土類磁石材料粉末の平均粒径は5～300μmが好ましく、10～100μmがより好ましい。平均粒径が5μm未満では酸化劣化、成形性劣化および等方性ボンド磁石の(BH)<sub>max</sub>の低下が顕著になり、300μm超では不均質な窒化組織となりやはり等方性ボンド磁石の(BH)<sub>max</sub>が低下する。

【0020】本発明の等方性ボンド磁石用のバインダーとして、熱硬化性樹脂、熱可塑性樹脂、ゴム材料または前記等方性希土類磁石材料のキュリー温度よりも低い融点の金属（合金）を用いることができる。これらのうち、熱硬化性樹脂、熱可塑性樹脂またはゴム材料が実用性が高い。また本発明の等方性ボンド磁石の成形方法として、圧縮成形法、射出成形法、押出成形法あるいはカレンダーロール法が実用性に富んでいる。圧縮成形法による場合のバインダーは熱硬化性樹脂が好ましく、特に熱硬化性液状樹脂が適している。具体例を挙げれば、エポキシ樹脂、ポリイミド樹脂、ポリエスチル樹脂、フェノール樹脂、フッ素樹脂またはケイ素樹脂の液状樹脂が好ましい。それらのうち液状エポキシ樹脂は安価で取り扱いが容易であり、かつ良好な耐熱性を示すため最も好ましい。この場合、圧縮成形後、加熱硬化処理を施す。加熱硬化条件は大気中または不活性ガス雰囲気中で100～200°C×0.5～5時間が好ましい。100°C×0.5時間未満では加熱硬化の重合反応が不十分であり、200°C×5時間超では熱処理の効果が飽和する。Arガス雰囲気中で加熱硬化を行うと(BH)<sub>max</sub>を高められるのでより好ましい。

### 【0021】

【実施例】以下、実施例により本発明を詳しく説明するが、それら実施例により本発明が限定されるものではない。

（実施例1）純度99.9%以上のSm, La, Fe, CoおよびZrを用いて、La含有量の異なる表1のNo.1～3の各窒化磁石粉末に対応する母合金の主要成分組成にそれぞれ配合した。次に各配合物をそれぞれ石英ノズルに入れて高周波誘導加熱により溶解して溶湯にし、次いでBe-Cu合金製の冷却ロール面に注湯する単ロール法により、周速度60m/秒で急冷凝固せしめ、厚さ約15μm、幅約2mmの各薄帯状母合金を得た。X線回折

（Cu-Kα線を使用）および透過型電子顕微鏡による観察の結果、各母合金は非晶質相からなることがわかった。次に、各母合金にArガス雰囲気中で720°C×1時

間の熱処理を施し、次いで室温まで冷却した。熱処理後のもののX線回折結果（Cu-Kα線を使用）および透過型電子顕微鏡による観察結果から、いずれもTbCu<sub>7</sub>型結晶相とbcc構造のα-Feとからなる多結晶複合組織になっており、非晶質相は消失していた。次に、熱処理後の各母合金をそれぞれ平均粒径約100μmに粉碎した。平均粒径はSympatec社製のレーザー回折型粒径分布測定装置：ヘロス・ロードスにより測定した。次に1atmの窒化ガス中で450°C×20時間加熱して窒化し、次いで室温まで冷却し等方性の窒化磁石粉末を得た。各磁石粉末のX線回折結果（Cu-Kα線を使用）および透過型電子顕微鏡による観察結果から、いずれもTbCu<sub>7</sub>型窒化磁石相、α-Feおよび微小な不可避的不純物相（酸化物等）からなることがわかった。各磁石粉末の窒化磁石相およびα-Feの平均結晶粒径、平均面積率を測定した。結果を表1に示す。表1において、（TbCu<sub>7</sub>型窒化磁石相の平均面積率）=100（%）-（α-Feの平均面積率）とし、観察視野内に存在する微小な不可避的不純物相は除外した。表1のものの主相のTbCu<sub>7</sub>型窒化磁石相の平均結晶粒径は約40～55nmであった。ボンド磁石特性を評価するために、表1のNo.1～3の各磁石粉末98重量部とエポキシ樹脂2重量部とをそれぞれ配合し、混練して3種のコンパウンドを作製した。次に、各コンパウンドをそれぞれ用いて、プレス圧980MPa (10ton/cm<sup>2</sup>) で圧縮成形し、次いで大気中で140°C×1時間の加熱硬化を行い等方性ボンド磁石を得た。次に20°C、着磁界強度：1.59MA/m(20kOe)の条件下得られた各等方性ボンド磁石の(BH)<sub>max</sub>、iHcおよび角形比(Hk/iHc)を測定した。結果を表1に示す。

（実施例2）純度99.9%以上のSm, La, Fe, CoおよびZrを用いて、実施例1のNo.2とはR含有量の異なる表1のNo.4, 5の窒化磁石粉末に対応する各母合金の主要成分組成に配合した。以降は実施例1と同様にして表1のNo.4, 5の窒化磁石粉末を作製した。得られた磁石粉末の平均結晶粒径、平均面積率を求めた。また、得られた磁石粉末を用いて実施例1と同様にして等方性ボンド磁石を作製し、磁気特性を測定した。これらの結果を表1に示す。

（実施例3）純度99.9%以上のSm, La, Fe, CoおよびZrを用いて、実施例1のNo.2とはCo含有量の異なる表1のNo.6, 7の窒化磁石粉末に対応する各母合金の主要成分組成に配合した。以降は実施例1と同様にして表1のNo.6, 7の窒化磁石粉末を作製した。得られた磁石粉末の平均結晶粒径、平均面積率を求めた。また、得られた磁石粉末を用いて実施例1と同様にして等方性ボンド磁石を作製し、磁気特性を測定した。これらの結果を表1に示す。

（実施例4）純度99.9%以上のSm, La, Fe, ZrおよびAlを用いて、CoおよびZrを含有しないNo.8, 9, M (Zr+Al) 元素含有量を9.5原子%とし

たNo. 10の窒化磁石粉末に対応する各母合金の主要成分組成に配合した。以降は実施例1と同様にして表1のNo. 8~10の窒化磁石粉末を作製した。得られた磁石粉末の平均結晶粒径、平均面積率を求めた。また、得られた磁石粉末を用いて実施例1と同様にして等方性ボンド磁石

\* 石を作製し、磁気特性を測定した。これらの結果を表1に示す。

[0022]

【表1】

【0023】(比較例1) 純度99.9%以上のSm, La, Fe, CoおよびZrを用いて、表2のLaを含まないNo.11, La量過多のNo.12の窒化磁石粉末に対応する各母合金の主要成分組成にそれぞれ配合した。以降は実施例1と同様にして表2のNo.11, 12の窒化磁石粉末

を作製した。得られた磁石粉末の平均結晶粒径、平均面積率を求めた。また、得られた磁石粉末を用いて実施例1と同様にして等方性ボンド磁石を作製し、磁気特性を測定した。これらの結果を表2に示す。

および $Z_r$ を用いて、表2のR含有量過少のNo. 21 (S<sub>m</sub>+L<sub>a</sub>=3.2原子%)、R含有量過多のNo. 32 (S<sub>m</sub>+L<sub>a</sub>=18.8原子%)の窒化磁石粉末に対応する各母合金の主要成分組成にそれぞれ配合した。以降は実施例1と同様にして表2のNo. 21, 22の窒化磁石粉末を作製した。得られた磁石粉末の平均結晶粒径、平均面積率を求めた。また、得られた磁石粉末を用いて実施例1と同様にして等方性ボンド磁石を作製し、磁気特性を測定した。これらの結果を表2に示す。

(比較例3) 純度99.9%以上のS<sub>m</sub>、L<sub>a</sub>、F<sub>e</sub>および<sub>10</sub> $Z_r$ を用いて、表2のM含有量過多のNo. 31の窒化磁石粉末に対応する母合金の主要成分組成に配合した。以降は実施例1と同様にして表2のNo. 31の窒化磁石粉末を作製した。得られた磁石粉末の平均結晶粒径、平均面積率を求めた。また、得られた磁石粉末を用いて実施例1と同様にして等方性ボンド磁石を作製し、磁気特性を測定した。これらの結果を表2に示す。

\* 定した。これらの結果を表2に示す。

(比較例4) 窒化時間を作成させた以外は実施例1と同様にして表2のNo. 41 (N含有量過少)、No. 42 (N含有量過多)の窒化磁石粉末を作製した。得られた磁石粉末の平均結晶粒径、平均面積率を求めた。また、得られた磁石粉末を用いて実施例1と同様にして等方性ボンド磁石を作製し、磁気特性を測定した。これらの結果を表2に示す。

(比較例5) Rに占めるS<sub>m</sub>比率を50原子%未満にした以外は実施例1のNo. 2と同様にして表2のNo. 51の窒化磁石粉末を作製した。得られた磁石粉末の平均結晶粒径、平均面積率を求めた。また、得られた磁石粉末を用いて実施例1と同様にして等方性ボンド磁石を作製し、磁気特性を測定した。これらの結果を表2に示す。

【0024】

【表2】

窒化磁石粉末組成(原子%)										$\alpha - Fe$	$(BH)_{max}$ (kJ/m <sup>3</sup> ) (MGOe)	$iHc$ (kA/m) (kOe)	$Hk/iHc$ (%)
No	Sm	La	Nd	Fe	Co	Zr	Al	N	平均結晶粒径 (nm)	平均面積率 (%)			
比較例 1	11	6.0	—	—	残部	5.0	3.5	—	14.7	26	13.0	63.7	644.6
	12	3.0	3.0	—	残部	5.0	3.5	—	14.8	22	13.1	50.1	437.7
比較例 2	21	2.5	0.7	—	残部	5.0	3.5	—	10.1	75	62.7	6.3	5.5
	22	18.1	0.7	—	残部	5.0	3.5	—	14.1	—	0	3.9	119.4
比較例 3	31	6.0	0.7	—	残部	—	12.0	—	14.6	9	12.9	6.8	1.5
	41	5.3	0.7	—	残部	5.0	3.5	—	9.0	24	13.0	42.2	545.2
比較例 4	42	5.3	0.7	—	残部	5.0	3.5	—	22.3	25	12.9	5.3	6.6
	51	2.0	0.7	3.3	残部	5.0	3.5	—	14.5	24	13.2	41.4	350.2
比較例 5	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	5.2	4.4	15.7

【0025】表1のものはTbCu<sub>5</sub>型窒化磁石相の平均結晶粒径は30~80nmであった。また表1、2から以下のことが知見された。実施例1と比較例1との比較から、1.59MA/m(20kOe)という実用性に富んだ低い着磁界強度で着磁した場合でも、Laを0.05~2.0原子%含有するNo. 1~3の各等方性ボンド磁石はNo. 11, 12のものに比べて(BH)maxおよび角形比(Hk/iHc)が高く、かつほぼ同等のiHcを有することがわかる。実施例1, 2および比較例1, 2の比較から、R量が4.2~7.4原子%のときに(BH)maxおよび角形比(Hk/iHc)を高めた等方性ボンド磁石を得られることがわかる。実施例1, 3から、

Co含有量が10原子%以下で高い(BH)maxおよび角形比(Hk/iHc)を得られることがわかる。実施例1, 4および比較例3から、M元素の含有量が10原子%以下のときには高い(BH)maxおよび高い角形比(Hk/iHc)を得られることがわかる。実施例1と比較例4から、N含有量が10原子%未満および20原子%超では(BH)max, iHcおよび角形比(Hk/iHc)が顕著に低下することがわかる。実施例1と比較例5から、Rに占めるSm比率が50原子%未満では(BH)max, iHcおよび角形比(Hk/iHc)が顕著に低下することがわかる。

50 【0026】(実施例5)他のM元素を含有する場合の

実施例を以下に説明する。表3に示す各窒化磁石粉末の主要成分組成とした以外は実施例1と同様にして窒化磁石粉末を作製し、次いで等方性ボンド磁石を作製し、磁\*

\* 気特性を測定した。結果を表3に示す。

【0027】

【表3】

	No	窒化磁石粉末組成(原子%)					ボンド磁石特性		
		Sm	La	Fe	Co	M	(BH) <sub>max</sub> (kJ/m <sup>3</sup> ) (MGoe)	iHc (kA/m) (kOe)	Hk/iHc (%)
実施例5	71	5.7	0.3	残部	5.0	3.0Zr+0.5Al	74.8 9.4	636.6 8.0	31.5
	72	5.7	0.3	残部	5.0	3.5Nb	75.6 9.5	636.6 8.0	32.8
	73	5.7	0.3	残部	5.0	2.9Nb+0.6Al	74.8 9.4	628.7 7.9	31.6
	74	5.7	0.3	残部	5.0	3.5B	76.4 9.6	644.6 8.1	33.5
	75	5.7	0.3	残部	5.0	3.0Ti	75.6 9.5	676.4 8.5	32.7
	76	5.7	0.3	残部	5.0	3.0B+0.5Al	74.8 9.4	636.6 8.0	30.0
	77	5.7	0.3	残部	5.0	1.0Zr+1.0Nb +1.0B	76.4 9.6	644.6 8.1	33.4
	78	5.7	0.3	残部	5.0	3.0Nb+0.5Ti	74.8 9.4	620.7 7.8	31.2
	79	5.7	0.3	残部	5.0	2.0Nb+1.0Zr +0.5Al	75.6 9.5	636.6 8.0	31.8
	80	5.7	0.3	残部	5.0	3.0Nb+0.5Hf	75.6 9.5	636.6 8.0	32.5
	81	5.7	0.3	残部	5.0	3.0Hf	72.4 9.1	636.6 8.0	30.2
	82	5.7	0.3	残部	5.0	3.5Al	74.0 9.3	636.6 8.0	31.5
	83	5.7	0.3	残部	5.0	3.5Mn	73.2 9.2	644.6 8.1	30.0
	84	5.7	0.3	残部	5.0	3.0Cr	72.4 9.1	628.7 7.9	30.9
	85	5.7	0.3	残部	5.0	3.5Sc	73.2 9.2	636.6 8.0	31.4

【0028】表3より、M元素としてZr, Nb, Hf, B, Ti, Al, Cr, MnおよびScの少なくとも1種を所定量含有する場合に、比較例1に比べて高い(BH)<sub>max</sub>および高い角形比(Hk/iHc)を得られ、かつ557.1 kA/m(7kOe)以上の実用に耐えるiHcを得られることがわかる。なお、実施例5の各窒化磁石粉末はいずれもTbCu<sub>2</sub>型窒化磁性相とbcc構造のα-Feとからなる多結晶複合組織を呈し、TbCu<sub>2</sub>型窒化磁性相の平均結晶粒径は15~90nmの範囲内にあり、α-Feの平均結晶粒径は5~60nmの範囲内ものであった。また、α-Feの平均面積率は10~60%であり、TbCu<sub>2</sub>型窒化磁性相の平均面積率は90~40%であった。

【0029】(実施例6)純度99.9%以上のSm, La, Fe, CoおよびZrを用いて、La含有量の異なる表4のNo.101~103の各窒化磁石粉末に対応する母合金の主要成分組成にそれぞれ配合した。次に各配合物をそれぞれ石英ノズルに入れて高周波誘導加熱により溶解して溶湯にし、次いでBe-Cu合金製の冷却ロール面に注湯する単ロール法により、周速度50m/秒で急冷凝

固せしめ、厚さ約30μm、幅約5mmの各薄帯状母合金を得た。次に、各母合金にArガス雰囲気中で700°C×1.5時間の熱処理を施し、次いで室温まで冷却した。熱処理後のもののX線回折結果(Cu-Kα線を使用)および透過型電子顕微鏡による観察結果から、いずれもTbCu<sub>2</sub>型結晶相からなり、非晶質相は消失していることがわかった。次に、熱処理後の各母合金をそれぞれ平均粒径約50μmに粉碎した。次に1atmの窒化ガス中で4040°C×15時間加熱して窒化し、次いで室温まで冷却し等方性の窒化磁石粉末を得た。各磁石粉末のX線回折結果(Cu-Kα線を使用)および透過型電子顕微鏡による観察結果から、いずれもTbCu<sub>2</sub>型窒化磁石相および微小な不可避的不純物相(酸化物等)からなることがわかった。各磁石粉末の窒化磁石相の平均結晶粒径、平均面積率を測定した。結果を表4に示す。表4において、観察視野内に存在する微小な不可避的不純物相は除外した。ボンド磁石特性を評価するために、表4のNo.101~103の各磁石粉末98重量部とエポキシ樹脂2重量部とを50それぞれ配合し、混練して3種のコンパウンドを作製し

た。次に、各コンパウンドをそれぞれ用いて、プレス圧980MPa (10ton/cm<sup>2</sup>) で圧縮成形し、次いで大気中で130°C × 2時間の加熱硬化を行い等方性ボンド磁石を得た。次に20°C、着磁磁界強度：1.59MA/m(20kOe)の条件で得られた各等方性ボンド磁石の(BH)<sub>max</sub>、iHcおよび角形比(Hk/iHc)を測定した。結果を表4に示す。

(実施例7) 純度99.9%以上のSm, La, Fe, CoおよびZrを用いて、実施例6のNo.102とはR含有量の異なる表4のNo.104, 105の窒化磁石粉末に対応する各母合金の主要成分組成に配合した。以降は実施例6と同様にして表4のNo.104, 105の窒化磁石粉末を作製した。得られた磁石粉末の平均結晶粒径、平均面積率を求めた。また、得られた磁石粉末を用いて実施例6と同様にして等方性ボンド磁石を作製し、磁気特性を測定した。これらの結果を表4に示す。

(実施例8) 純度99.9%以上のSm, La, Fe, CoおよびZrを用いて、実施例6のNo.102とはCo含有量の異なる表4のNo.106, 107の窒化磁石粉末に対応する\*

\*各母合金の主要成分組成に配合した。以降は実施例6と同様にして表4のNo.106, 107の窒化磁石粉末を作製した。得られた磁石粉末の平均結晶粒径、平均面積率を求めた。また、得られた磁石粉末を用いて実施例6と同様にして等方性ボンド磁石を作製し、磁気特性を測定した。これらの結果を表4に示す。

(実施例9) 純度99.9%以上のSm, La, Fe, Co, ZrおよびAlを用いて、Zrを含有しないNo.108, 109, M (Zr+Al)元素の含有量を9.5原子%としたNo.110の窒化磁石粉末に対応する各母合金の主要成分組成に配合した。以降は実施例6と同様にして表4のNo.108~110の窒化磁石粉末を作製した。得られた磁石粉末の平均結晶粒径、平均面積率を求めた。また、得られた磁石粉末を用いて実施例6と同様にして等方性ボンド磁石を作製し、磁気特性を測定した。これらの結果を表4に示す。

【0030】

【表4】

窒化磁石粉末組成(原子%)								TbCu <sub>7</sub> 型窒化磁石相			(BH) <sub>max</sub> (kJ/m <sup>3</sup> ) (MGoe)	iHc (kA/m) (kOe)	Hk/iHc (%)	
No	Sm	La	Nd	Fe	Co	Zr	Al	N	平均結晶粒径 (nm)	平均面積率 (%)				
実施例 6	101	8.8	0.1	—	残部	4.0	3.9	—	13.1	33	100	64.5	684.4	27.1
	102	7.9	1.0	—	残部	4.0	3.9	—	13.2	30	100	8.1	8.6	
	103	7.0	1.9	—	残部	4.0	3.9	—	13.2	30	100	8.7	8.5	
実施例 7	104	7.0	1.0	—	残部	4.0	3.9	—	13.1	39	97.2	70.8	652.6	30.0
	105	13.5	1.0	—	残部	4.0	3.9	—	13.1	27	100	6.9	660.5	30.4
	106	7.9	1.0	—	残部	—	3.9	—	13.0	32	100	8.3	8.3	
実施例 8	107	7.9	1.0	—	残部	9.5	3.9	—	13.2	30	100	8.3	8.2	
	108	7.9	1.0	—	残部	4.0	—	0.2	13.0	42	100	8.4	8.2	
	109	7.9	1.0	—	残部	4.0	—	—	13.0	70	100	8.5	7.6	
実施例 9	110	7.9	1.0	—	残部	4.0	5.0	4.5	13.1	28	100	65.3	565.0	27.4
												8.2	7.1	
												8.0	8.8	
												63.7	700.3	30.6

【0031】(比較例6) 純度99.9%以上のSm, La, Fe, CoおよびZrを用いて、表5のLaを含まないNo.121, La量過多のNo.122の窒化磁石粉末に対応する各母合金の主要成分組成にそれぞれ配合した。以降は実施例1と同様にして表5のNo.121, 122の窒化磁石粉末を作製した。得られた磁石粉末の平均結晶粒径、平均面積率を求めた。また、得られた磁石粉末を用いて実施例6と同様にして等方性ボンド磁石を作製し、磁気特性を測定した。これらの結果を表5に示す。

(比較例7) 純度99.9%以上のSm, La, Fe, CoおよびZrを用いて、Zr含有量が過多の表5のNo.131 50

の窒化磁石粉末を作製した。得られた磁石粉末の平均結晶粒径、平均面積率を求めた。また、得られた磁石粉末を用いて実施例6と同様にして等方性ボンド磁石を作製し、磁気特性を測定した。これらの結果を表5に示す。

(比較例8) 窒化時間を変化させた以外は実施例6と同様にして表5のNo.141 (N含有量過少)、No.142 (N含有量過多)の窒化磁石粉末を作製した。得られた磁石粉末の平均結晶粒径、平均面積率を求めた。また、得られた磁石粉末を用いて実施例6と同様にして等方性ボンド磁石を作製し、磁気特性を測定した。これらの結果を表5に示す。

(比較例9) Rに占めるSm比率を50原子%未満にした以外は実施例6のNo.102と同様にして表5のNo.151の窒化磁石粉末を作製した。得られた磁石粉末の平均結晶粒径、平均面積率を求めた。また、得られた磁石粉末を用いて実施例6と同様にして等方性ボンド磁石を作製し、磁気特性を測定した。これらの結果を表5に示す。

【0032】

【表5】

No	窒化磁石粉末組成(原子%)						TbCu <sub>7</sub> 型窒化磁石相			(BH) <sub>max</sub> (kJ/m <sup>3</sup> ) (MGoe)	iHc (kA/m) (kOe)	Hk/iHc (%)		
	Sm	La	Nd	Fe	Co	Zr	Al	N	平均結晶粒径 (nm)	平均面積率 (%)				
比較例 6	121	8.9	—	—	残部	4.0	3.9	—	13.2	31	100	60.5	684.4	24.8
	122	5.6	3.3	—	残部	4.0	3.9	—	13.1	32	100	46.2	461.6	23.7
比較例 7	131	7.9	1.0	—	残部	4.0	12.4	—	13.0	25	100	44.6	700.3	24.6
	141	7.9	1.0	—	残部	4.0	3.9	—	8.7	31	100	40.6	549.1	27.1
比較例 8	142	7.9	1.0	—	残部	4.0	3.9	—	21.9	30	100	46.2	517.3	16.6
	151	2.9	1.0	5.0	残部	4.0	3.9	—	13.0	34	100	37.4	358.1	16.2

\* 【0033】表4のものはTbCu<sub>7</sub>型窒化磁石相の平均結晶粒径が30~80nmであった。また表4, 5から以下のことが知見された。実施例6と比較例6との比較から、1.59MA/m(20kOe)という実用性に富んだ低い着磁界強度で着磁した場合でも、Laを所定量含有するNo.101~103の各等方性ボンド磁石はNo.121, 122のものに比べて(BH)<sub>max</sub>および角形比(Hk/iHc)が高く、かつほぼ同等のiHcを有することがわかる。実施例6, 7から、Rを所定量含有するときに(BH)<sub>max</sub>および角形比(Hk/iHc)を高められることがわかる。実施例6, 8から、Co含有量が10原子%以下のときに高い(BH)<sub>max</sub>および高い角形比(Hk/iHc)を得られることがわかる。実施例6, 9および比較例7から、M元素の含有量が10原子%以下のときに高い(BH)<sub>max</sub>および高い角形比(Hk/iHc)を得られることがわかる。実施例6と比較例8から、N含有量が10原子%未満および20原子%超では(BH)<sub>max</sub>, iHcおよび角形比(Hk/iHc)が顕著に低下することがわかる。実施例6と比較例9から、Rに占めるSm比率が50原子%未満では(BH)<sub>max</sub>, iHcおよび角形比(Hk/iHc)が顕著に低下することがわかる。

【0034】(実施例10)他のM元素を含有する場合の実施例を以下に説明する。表6に示す各窒化磁石粉末の主要成分組成とした以外は実施例6と同様にして窒化磁石粉末を作製し、次いで等方性ボンド磁石を作製し、磁気特性を測定した。結果を表6に示す。

【0035】

【表6】

No	窒化磁石粉末組成(原子%)					ボンド磁石特性		
	S m	L a	F e	C o	M	(BH) <sub>max</sub> (kJ/m <sup>3</sup> ) (MGoe)	iHc (kA/m) (kOe)	Hk/iHc (%)
実施例 10	201	8.7	0.6	残部	5.0	2.0Zr+1.5Al	66.9 8.5	676.4 8.5
	202	8.7	0.6	残部	5.0	3.5Nb	66.9 8.4	684.4 8.6
	203	8.7	0.6	残部	5.0	2.9Nb+0.6Al	66.1 8.3	668.5 8.4
	204	8.7	0.6	残部	5.0	3.5B	66.9 8.4	676.4 8.5
	205	8.7	0.6	残部	5.0	3.0Ti	66.9 8.4	700.3 8.8
	206	8.7	0.6	残部	5.0	3.0B+0.5Al	66.1 8.3	676.4 8.5
	207	8.7	0.6	残部	5.0	1.0Zr+1.0Nb +1.0B	66.9 8.4	684.4 8.6
	208	8.7	0.6	残部	5.0	3.5Cr	64.5 8.1	652.6 8.2
	209	8.7	0.6	残部	5.0	3.0Mn	66.1 8.3	652.6 8.2
	210	8.7	0.6	残部	5.0	2.0Nb+1.5Hf	66.9 8.4	660.5 8.3
	211	8.7	0.6	残部	5.0	3.5Hf	65.3 8.2	652.6 8.2
	212	8.7	0.6	残部	5.0	2.5Al	66.1 8.3	652.6 8.2
	213	8.7	0.6	残部	5.0	3.5Sc	65.3 8.2	660.5 8.3

【0036】表6より、M元素としてZr, Nb, Hf, B, Ti, Al, Cr, MnおよびScの少なくとも1種を所定量含有する場合に、比較例6に比べて高い(BH)<sub>max</sub>および高い角形比(Hk/iHc)を得られ、かつ557.1kA/m(7kOe)以上の実用に耐えるiHcを得られることがわかる。なお、実施例10の各窒化磁石粉末は平均結晶粒径は15~90nmのTbCu<sub>7</sub>型窒化磁石相から実質的になっていた。

【0037】(実施例11)実施例4のNo.8~10の磁粉のTbCu<sub>7</sub>型窒化磁石相の平均結晶粒径の測定データ(TbCu<sub>7</sub>型結晶粒数(n)=50)からTbCu<sub>7</sub>型結晶粒の粒径分布を求めて比較した。結果を表7に示す。表7ではTbCu<sub>7</sub>型結晶粒の粒径分布を平均結晶粒径(D)を示す。

\* 粒径(D)を超える結晶粒の平均面積率で示している。すなわち、Dが大きいほどTbCu<sub>7</sub>型結晶粒の粒径分布がブロードであることを意味する。表7のNo.8~10より、M元素の含有量が高くなるほどTbCu<sub>7</sub>型結晶粒の粒径分布がシャープになることがわかる。同様にして実施例9のNo.108~110の磁粉のTbCu<sub>7</sub>型窒化磁石相の結晶粒径分布を求めた結果を表7に示す。表7のNo.108~110より、M元素の含有量が高くなるほどTbCu<sub>7</sub>型結晶粒の粒径分布がシャープになることがわかる。

#### 【0038】

#### 【表7】

窒化磁石粉末	D (nm)	Dを超えるTbCu <sub>7</sub> 型結晶粒の平均面積率(%)
No.8	44	8.5
No.9	56	9.9
No.10	10	3.7
No.108	42	7.6
No.109	70	8.4
No.110	28	2.8

【0039】(実施例12)実施例1のNo.2および比較例1のNo.11のコンパウンドをそれぞれ用い、外径22mm、内径20mm、高さ12mmの等方性リングボンド磁石を圧縮成形し、次いで加熱硬化した。得られた2種の等方性リングボンド磁石に、それぞれ磁束量が飽和する

条件で対称8極着磁を施し、次いでブラシレスモータの回転子側に組み込んでブラシレスモータを構成した。このブラシレスモータの最高効率を測定した結果、実施例1のNo.2のコンパウンドを用いて作製した等方性リングボンド磁石を組み込んだブラシレスモータの最高効率

が、比較例1のNo.11のコンパウンドを用いて作製した等方性リングボンド磁石を組み込んだブラシレスモータの最高効率に比べて1.0%高いことがわかった。この最高効率の差は組み込んだ等方性リングボンド磁石の磁束量の差に依るものである。なお、前記ブラシレスモータの回転子と固定子間の平均エアギャップ間隔を0.3mmとした。

(実施例13) 実施例6のNo.102および比較例6のNo.121のコンパウンドをそれぞれ用い、外径22mm、内径20mm、高さ12mmの等方性リングボンド磁石を圧縮成形し、次いで加熱硬化した。得られた2種の等方性リングボンド磁石をそれぞれ用いて、以降は実施例12と同様にしてブラシレスモータを構成し、最高効率を測定した。その結果、実施例6のNo.102のコンパウンドを用いて作製した等方性リングボンド磁石を組み込んだブラシレスモータの最高効率が、比較例6のNo.121のコンパウンドを用いて作製した等方性リングボンド磁石を組み込んだブラシレスモータの最高効率に比べて0.8%高いことがわかった。この最高効率の差は組み込んだ等方性リングボンド磁石の磁束量の差に依るものである。

【0040】(実施例14)図1のマグネットロール装置23を以下のようにして作製し、評価した。まず、シャフト22に固着された円筒状の等方性フェライト焼結磁石17の現像磁極部に軸方向に延在する凹溝13を形成後、実施例1のNo.2、比較例1のNo.11、実施例6のNo.102、比較例6のNo.121のコンパウンドをそれぞれ用い、押出成形し、次いで加熱硬化し、凹部14の厚みを2.0mmに形成した4種の等方性シート状ボンド磁石16を作製した。次いで前記4種の等方性シート状ボンド磁石16をそれぞれ凹溝13に固着し、マグネットロール装置23を構成した。等方性シート状ボンド磁石16の軸方向には凹部14が延びて形成されているので、現像磁極直上の空隙磁束密度分布波形が2山ピークを示すように構成されている。\*

\*このマグネットロール装置23の長手方向の中心におけるN1磁極直上の表面磁束密度Boを測定し、表8の結果を得た。表8の表面磁束密度Boは相対値で示してある。表8より、本発明の等方性ボンド磁石を組み込んだ場合に高いBoが得られ、高性能のマグネットロール装置を構成できることがわかる。

#### 【0041】

#### 【表8】

コンパウンド	表面磁束密度Bo (%)
実施例1, No. 2	100
比較例1, No. 11	92
実施例6, No. 102	97
比較例6, No. 121	88

#### 【0042】

【発明の効果】以上記述の通り、本発明によれば、超微結晶粒の硬質磁性相、あるいは超微結晶粒の硬質磁性相と軟質磁性相とから実質的になり、従来に比べて着磁性を向上した高性能の窒化型等方性希土類磁石材料および

それを用いてなる高性能の等方性ボンド磁石を提供することができる。また本発明によれば、前記等方性ボンド磁石を用いて構成した高性能の回転機を提供することができる。また本発明によれば、前記等方性ボンド磁石を用いて構成した高性能のマグネットロールを提供することができる。

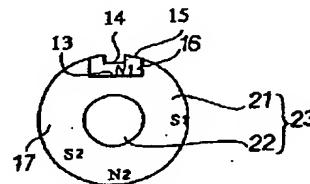
#### 【図面の簡単な説明】

【図1】本発明のマグネットロールの一例を示す要部断面図である。

#### 【符号の説明】

30 13 軸方向に平行に設けた溝部、14 凹部、15 凸部、16 シート状ボンド磁石、17 マグネットロール基体部、21 マグネットロール、22 シャフト、23 マグネットロール装置。

【図1】



フロントページの続き

(51) Int. Cl. 1'

識別記号

C 22 C 38/38

F 16 C 13/00

G 03 G 15/09

F I

「マークド」(参考)

F 16 C 13/00

A

G 03 G 15/09

A

H 01 F 1/08

A

(16)

特開2001-135509

H O 1 F 1/08

1/04

B

H

A